

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

PAT-NO: JP406306341A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 06306341 A

TITLE: ONE-COMPONENT SELF-CROSSLINKING CHLOROPRENE ADHESIVE

PUBN-DATE: November 1, 1994

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

OKAMOTO, KOICHI

MORI, MASAHIITO

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME

SUNSTAR ENG INC

COUNTRY

N/A

APPL-NO: JP05099323

APPL-DATE: April 26, 1993

INT-CL (IPC): C09J111/00, C09J123/28 , C09J157/02

ABSTRACT:

PURPOSE: To provide the title adhesive which exhibits excellent adhesive strength and heat resistance even when applied to a polypropylene adherend.

CONSTITUTION: The adhesive comprises 100 pts.wt. chloroprene rubber condense with aminoalkylalkoxysilane, 2-100 pts.wt. chlorinated polypropylene condensed with an aminoalkylalkoxysilane, a petroleum resin as a tackifier, and an org. solvent.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO

DERWENT-ACC-NO: 1995-019479

DERWENT-WEEK: 199728

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: One-pack type self-crosslinking chloroprene adhesive -  
comprises chloroprene-rubber modified with condensed  
amino:alkyl:alkoxy:silane, modified chlorinated  
propylene@!, petroleum tackifier and organic solvent

PATENT-ASSIGNEE: SUNSTAR GIKEN KK[SUNZ]

PRIORITY-DATA: 1993JP-0099323 (April 26, 1993)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES
MAIN-IPC			
JP 06306341 A	November 1, 1994	N/A	004
C09J 111/00			
JP 2619599 B2	June 11, 1997	N/A	004
C09J 111/00			

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 06306341A	N/A	1993JP-0099323	April 26,
1993			
JP 2619599B2	N/A	1993JP-0099323	April 26,
1993			
JP 2619599B2	Previous Publ.	JP 6306341	N/A

INT-CL (IPC): C08C019/32, C09J111/00 , C09J123/28 , C09J157/02 ,  
C09J111/00 , C09J123:28 , C09J157:02

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 06306341A

BASIC-ABSTRACT:

The adhesive comprises (A) chloroprene rubber modified with condensed aminoalkylalkoxysilane (B) chlorinated polypropylene modified with condensed aminoalkylalkoxysilane. (C) petroleum resin as tackifier and (D) organic solvent. (B) is used in amt. of 2-100, pref. 5-50 pts.wt. per 100 pts.wt. of (A). The aminoalkylalkoxysilane includes aminomethyl triethoxysilane, M-(beta-aminoethyl)amino ethyl trimethoxysilane, aminomethyl diethoxysilane, n-(beta-aminoethyl)methyl tributoxysilane, gamma-aminopropyl triethoxysilane, N-(beta-aminoethyl)-gammaaminopropylme- thyl dimethoxysilane, etc. Amt. used is in 2-200 pts.wt. per 100 pts.wt. of chloroprene rubber or chlorinated polypropylene.

(C) includes aromatic, aliphatic and alicyclic hydrocarbon resins and (D) includes aromatic, aliphatic, alicyclic and chlorinated hydrocarbons, ketone, ester, etc.

ADVANTAGE - The one-pack type chloroprene rubber adhesive is self-crosslinking, shows strong adhesion to polypropylene and other plastics, metal, textile material, wood, leather, etc. and has good resistance to heat and thermal creep and high strength at high temp. and under high load. (11/14-6 306341).

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

DERWENT-CLASS: A18 A81 G03

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-306341

(43)公開日 平成6年(1994)11月1日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 0 9 J 111/00	J D M	7211-4 J		
123/28	J C M	7107-4 J		
157/02	L M J	7415-4 J		

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 4 頁)

(21)出願番号 特願平5-99323

(22)出願日 平成5年(1993)4月26日

(74)上記 名の代理人 弁理士 青山 蓑 (外 名)

(71)出願人 390008866

サンスター技研株式会社

大阪府高槻市明田町7番1号

(72)発明者 岡本 浩一

大阪府高槻市明田町7番1号 サンスター  
技研株式会社内

(72)発明者 森 正仁

大阪府高槻市明田町7番1号 サンスター  
技研株式会社内

(74)代理人 弁理士 青山 蓑 (外1名)

(54)【発明の名称】 一液自己架橋型クロロプレン系接着剤

(57)【要約】

【目的】 本発明は、特にポリプロピレン被着材料に適用した場合にも、優れた接着力および耐熱性を発揮する一液自己架橋型クロロプレン系接着剤を提供する。

【構成】 本発明の一液自己架橋型クロロプレン系接着剤は、アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレンゴム、アミノアルキルアルコキシシランを縮合させた塩素化ポリプロピレン、粘着付与樹脂として石油樹脂系および有機溶剤から成る一液型クロロプレン系接着剤であって、上記アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレンゴムのクロロプレンゴム100重量部に対してアミノアルキルアルコキシシランを縮合させた塩素化ポリプロピレンの塩素化ポリプロピレン2～100重量部を用いたことを特徴とする。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレングム、アミノアルキルアルコキシシランを縮合させた塩素化ポリプロピレン、粘着付与樹脂として石油樹脂系および有機溶剤から成る一液型クロロプレレン系接着剤であって、上記アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレングムのクロロプレングム100重量部に対してアミノアルキルアルコキシシランを縮合させた塩素化ポリプロピレンの塩素化ポリプロピレン2～100重量部を用いたことを特徴とする一液自己架橋型クロロプレレン系接着剤。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は一液自己架橋型クロロプレレン系接着剤、更に詳しくは、ベース成分であるクロロプレングムに塩素化ポリプロピレンを加え、これらにアミノアルキルアルコキシシランを縮合させて自己架橋型とすることにより、特にポリプロピレン被着材料に対しても、優れた接着力並びに耐熱性、特に高温負荷時の強度や耐熱クリープ性を発揮することができる一液型クロロプレレン系接着剤に関する。

## 【0002】

【従来の技術と発明が解決しようとする課題】各種のゴム系接着剤にあって、特にクロロプレングムをベースとするクロロプレレン系接着剤は広範囲の用途に適用されている。かかる接着剤として、クロロプレングムおよび粘着付与樹脂、必要に応じて加硫剤もしくは加硫促進剤を加えたものを適当な有機溶剤に溶解した一液型が知られているが、耐熱性、特に高温(80～130℃)負荷時の強度や耐熱クリープ性が弱く、このためイソシアネート系硬化剤を組合せた二液型が採用されつつある。本発明者らは、二液型と同等もしくはそれ以上の優れた接着力および耐熱性を発揮する一液型のクロロプレレン系接着剤を提供するため鋭意研究を進めた結果、アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレングム、粘着付与樹脂として石油樹脂系および有機溶剤から成る一液型クロロプレレン系接着剤を開発し、これについて特許出願係属中である(特開平1-301776号公報参照)。

【0003】この接着剤は、その配合調製中にアミノアルキルアルコキシシランでクロロプレングムを反応変性し、該アミノアルキルアルコキシシランが湿気で架橋反応を起こすことから、所期の接着力および耐熱性の向上を期待するものではあるが、特に極性の乏しいポリプロピレン被着材料に適用すると、他の被着材料の場合と比較して、初期接着力や常態接着力並びに耐熱老化性に劣ることが認められた。一方、従来よりポリプロピレンに対し接着性が優れる材料として、塩素化プロピレンが知られているが、他の材料との相溶性が悪く、安定に接着剤として配合することは不可能であった。この課題を解決する目的で異種モノマーを共重合し、相溶性を改良し

た塩素化ポリオレフィンも開発されているが、接着力が犠牲となっていた。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】そこで、本発明者らは、上記接着剤配合において、クロロプレングムおよび塩素化ポリプロピレンをアミノアルキルアルコキシで反応変性すると相溶性が向上し、安定でかつポリオレフィンに対する接着性の良好な接着剤の開発が可能なることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0005】すなわち、本発明は、アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレングム、アミノアルキルアルコキシシランで縮合させた塩素化ポリプロピレン、粘着付与樹脂として石油樹脂系および有機溶剤から成る一液型クロロプレレン系接着剤であって、上記アミノアルキルアルコキシシランを縮合させたクロロプレングムのクロロプレングム100部(重量部、以下同様)に対してアミノアルキルアルコキシシランを縮合させた塩素化ポリプロピレンの塩素化ポリプロピレン2～100部を用いたことを特徴とする一液自己架橋型クロロプレレン系接着剤を提供するものである。

【0006】本発明は、上述の如く、クロロプレングムに塩素化ポリプロピレンを添加したことを特徴とするが、その割合は、クロロプレングム100部に対して塩素化ポリプロピレン2～100部、好ましくは5～50部となるように選定する。塩素化ポリプロピレンの量が2部未満であると、所望のポリオレフィン接着性が得られず、また100部を越えると、初期接着性および耐熱性が低下する。

【0007】本発明におけるアミノアルキルアルコキシシラン(以下、アミノシランと略す)としては、たとえばアミノメチルトリエトキシシラン、N-(β-アミノエチル)アミノメチルトリメトキシシラン、アミノメチルジエトキシシラン、N-(β-アミノエチル)メチルトリブトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、γ-アミノイソブチルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノ-β-メチルプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。かかるアミノシランの使用量は通常、クロロプレングムおよび塩素化ポリプロピレンの合計量100部に対して2～20部の範囲で選定すればよい。

【0008】本発明で粘着付与樹脂として用いる石油樹脂には、たとえば芳香族炭化水素、脂肪族炭化水素および脂環式炭化水素が挙げられる。粘着付与樹脂の使用量は通常、クロロプレングム100部に対して10～100部の範囲で選定すればよい。

【0009】本発明における有機溶剤としては、たとえばトルエン、キシレンなどの芳香族系、アセトン、ME

K、MIBKなどのケトン系、シクロヘキサンなどの脂環族系、ヘキサン、ペンタンなどの脂肪族系、酢酸エチル、酢酸ブチルなどのエステル系、トリクロロエチレンなどの塩素化炭化水素系が挙げられる。

【0010】本発明に係る一液自己架橋型クロロプレン系接着剤は、上述のクロロプレンゴムおよび塩素化ポリプロピレンをそれぞれ有機溶剤に溶解させた後、それぞれにアミノシランを加え、所定の条件にて縮合させた後、両縮合生成物を混合し、これに石油樹脂系粘着付与樹脂を配合することにより、製造される。なお、クロロプレンゴム、塩素化ポリプロピレンを有機溶剤に溶解し、一括してアミノシランを縮合させてもよい。また、必要に応じてゴム練り時の安定剤としてマグネシヤ、亜鉛華など、その他かかる接着剤には充填剤、脱水剤、可塑剤、老化防止剤等を適量配合してもよい。なお、メタノールなどを添加しておけば、貯蔵安定性が向上する。かかる接着剤の調製は、通常のロール混練法あるいは直接溶解法に準じて溶解させた後、所定の条件にてアミノシランを反応縮合させて行なえばよい。

#### 【0011】

【発明の効果】以上の構成から成る本発明接着剤は、特にポリプロピレン被着材料(シート、フィルム、フォーム)に適用した場合にも、優れた初期接着力や常態接着力および耐熱接着力を発揮することができる。なお、このように本発明はポリプロピレン被着材料に適用した場合にその有用性が顕著に発揮されるが、それ以外の被着材料、たとえば他のポリオレフィン被着材料(ポリエチレン、ポリプロピレンとジエンモノマーとの共重合体など)、さらにそれらのガラス繊維、木粉、古紙などを含む複合材料、金属、織布、繊維材、木材、皮革、他のプラスチック材料(シート、フィルム、フォーム)等の接着や積層にも適用できることは云うまでもない。

#### 【0012】

【実施例】次に実施例および比較例を挙げて、本発明をより具体的に説明する。

##### 実施例1〜3および比較例1

下記表1に示す部数の各成分において、先ずクロロプレンゴムとマグネシヤをミキシングロールにて混練後、ト

ルエンに溶解させ、塩素化ポリプロピレンを混合した後、アミノシランを加え、80℃で4時間反応させ、次いで冷却してから、石油樹脂を加え攪拌混合して一液型接着剤を得る。

#### 【0013】比較例2

下記表1に示す部数の各成分において、先ずクロロプレンゴムとマグネシヤをミキシングロールにて混練後、塩素化ポリプロピレンおよび石油樹脂と共にトルエンに溶解させて主剤を得る。使用に際して、この主剤に硬化剤としてトリフェニルメタントリイソシアネート(住友バイエルウレタン(株)製、デスモジュールR)を加える二液型とする(主剤100/硬化剤5)。

#### 【0014】性能試験

実施例1〜3および比較例1,2の一液型または二液型接着剤について、下記項目の試験を行い、結果を表1に併記する。

##### (1)貯蔵安定性

40℃で24時間貯蔵した後、分離、ゲル化の有無を目視評価する。○は分離、ゲル化いずれもなし、×は分離、ゲル化共に大。

##### (2)接着性

ポリプロピレン基材(三井石油化学工業(株)製、IP-461)に各接着剤を150g/cm<sup>2</sup>でエアスプレー塗布し、80℃で2分間乾燥後、これに120℃に加熱したポリオレフィンフォーム表皮材(東レ(株)製、トーレペフ)を1.0kg/cm<sup>2</sup>の圧力で30秒間圧縮して試験片を作製する。貼合せ(圧縮)10分後の初期剥離強度(kg/25mm)、この試験片の20℃、65%RHで24時間養生硬化後の常態剥離強度(kg/25mm)、そして熱老化後(70℃×100時間)の剥離強度(kg/25mm)をそれぞれ測定し、さらに70℃の雰囲気中表皮材側の一端に50g/25mmの荷重をかけ24時間後の剥離長さ(耐熱クリープ)を測定する。なお、表1中、AFはポリプロピレン基材からの界面破壊、MBは表皮材の破壊、落下は50mm以上のはがれを示す。

#### 【0015】

##### 【表1】

		実 施 例			比 較 例	
		1	2	3	1	2
クロロブレンゴム <sup>①</sup>		100	100	100	100	100
マグネシヤ		5	5	5	5	5
トルエン		650	650	650	650	650
アミノシラン <sup>②</sup>		10	10	10	10	—
塩素化ポリプロピレン <sup>③</sup> (30%溶液)		15	30	—	—	30
塩素化ポリプロピレン <sup>④</sup> (30%溶液)		—	—	30	—	—
石油樹脂 <sup>⑤</sup>		30	30	30	30	30
デスモジュールR		—	—	—	—	—
貯蔵安定性		○	○	○	○	×
剥離強度 (kg/25mm)	初期	2.1 MB	2.0 MB	2.0 MB	1.4 AF	1.5 AF/MB
	常態	2.0 MB	2.0 MB	2.0 MB	0.8 AF	1.8 AF/MB
	熟老化後	1.8 MB	1.9 MB	1.6 MB	0.6 AF	1.6 AF/MB
耐熱クリープ (mm)		0	0	0	落下 AF	落下 AF

【0016】注①)昭和デュポンケミカル(株)製、ネオ  
ブレンWHV

②)γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、日本ユニ  
カー(株)製、NUCシリコーンA-1100

③)山陽国策バルブ(株)製、スーパークロン803L(3\*

\*0%トルエン溶液)

④)東洋化成工業(株)製、ハードレン15L(30%トル  
エン溶液)

⑤)日本石油化学(株)製、日石ネオポリマー120